

УДК 539.1+539.2+538.913

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ВЕРОЯТНОСТИ БЕЗОТДАЧНОГО ПОГЛОЩЕНИЯ ГАММА-КВАНТОВ ЯДРАМИ В ТВЕРДЫХ ТЕЛАХ МЕТОДОМ ЗАДЕРЖАННЫХ СОВПАДЕНИЙ

Ф.Г. Вагизов, Э.К. Садыков, В.В. Аринин, О.А. Кочаровская

Аннотация

Предложен метод измерения вероятности безотдачного поглощения мессбауэровских гамма-квантов (фактор Лэмба–Мессбауэра) посредством методики задержанных совпадений. Проведены измерения эффективной толщины для ряда образцов $K_4Fe(CN)_6 \cdot 3H_2O$ и определен фактор безотдачного поглощения для этого соединения $f = 0.339 \pm 0.004$.

Ключевые слова: фактор Лэмба–Мессбауэра, мессбауэровская спектроскопия, метод задержанных совпадений.

Введение

Вероятность безотдачного поглощения (испускания) ядер в твердых телах f тесно связана с динамикой кристаллической решетки и является одним из важных и информативных параметров мессбауэровской спектроскопии. Вероятность безотдачных переходов мессбауэровских ядер определяется выражением

$$f = \exp(-\langle x^2 \rangle / \lambda^2)$$

и может быть использована для получения информации о среднеквадратичных смещениях этих атомов в направлении распространения гамма-излучения $\langle x^2 \rangle$. Она чрезвычайно чувствительна к различным изменениям состояния твердого тела под действием температуры, давления, фазовых переходов и других процессов, приводящих к изменениям фононного спектра кристалла.

Подобного рода информация может быть получена по данным упругого рассеяния нейтронов и рентгеновского излучения. Поскольку эти методы основаны на интерференции излучения, они чувствительны к степени кристалличности исследуемых объектов и их информативные возможности существенно уменьшаются при исследовании аморфных тел и нанокристаллических веществ. Для определения среднеквадратичных смещений резонансных атомов эффект Мессбауэра предоставляет определенные преимущества, поскольку его результаты мало зависят от структурного порядка, и он может быть использован с равным успехом как для кристаллических веществ, так и аморфных соединений, а в некоторых случаях даже для жидкостей.

В мессбауэровской спектроскопии известно несколько экспериментальных методов для определения вероятности безотдачных переходов [1, р. 202] и [2–11]. Большинство из них основано на зависимости ширины [3–5], интенсивности [6–8] и площади мессбауэровской линии [9–11] от эффективной толщины поглотителя

$$\beta = f n \sigma_0,$$

где n – число резонансных ядер на единицу площади, σ_0 – сечение резонансного поглощения. В наиболее часто используемой геометрии мессбауэровского эксперимента (пропускание) измеряется отношение

$$\varepsilon(v_s) = \frac{N(\infty) - N(v_s)}{N(\infty) - N_b},$$

где $N(v_s)$ и $N(\infty)$ – скорость счета гамма-квантов в резонансе и вдали от него, N_b – интенсивность фона в области энергии мессбауэровского излучения (14.4 кэВ для ^{57}Co). Основными составляющими фонового излучения в этой области являются: рентгеновское (6–7 кэВ) излучение в источнике вследствие β -распада и внутренней конверсии; рассеянное излучение, вызванное эффектом Комптона и электронным поглощением гамма-квантов высокоэнергичных переходов (122, 136.4 кэВ для ^{57}Co). Фоновое излучение приводит к систематической ошибке данных по измерению фактора Лэмба–Мессбауэра на основе зависимости интенсивности и площади резонансной линии от эффективной толщины поглотителя [2, 12]. Эта ошибка увеличивается для кристаллов, содержащих тяжелые элементы. Ситуация несколько улучшается при использовании детекторов с хорошим энергетическим разрешением. Так, применение фильтров мягкого излучения и полупроводниковых детекторов позволяет существенно уменьшить вклад крыльев от рентгеновских пиков в области энергии мессбауэровского перехода. Однако этот подход работает только в области мягкого излучения. Дальнейший прогресс можно ожидать от применения методов временной селекции.

Для ряда мессбауэровских изотопов ($^{57}\text{Co}(\text{Fe})$, $^{151}\text{Gd}(\text{Eu})$, $^{125}\text{Sb}(\text{Te})$) гамма-резонансный квант всегда появляется после распада вышележащего состояния, момент распада которого может служить началом отчета времени. Так, например, для ^{57}Co временной меткой формирования мессбауэровского состояния $\frac{3}{2}^-$ с энергией 14.4 кэВ является регистрация кванта с энергией 122 кэВ, возникновение которого обусловлено переходом $\frac{5}{2}^- \rightarrow \frac{3}{2}^-$. Время жизни этого мессбауэровского состояния порядка 100 нс, что позволяет достаточно эффективно использовать стандартную технику задержанных совпадений. Уже в первых мессбауэровских экспериментах было замечено, что в спектрах с временной фильтрацией наблюдается существенное увеличение интенсивности линии поглощения и даже улучшение энергетического разрешения при регистрации спектра в определенных временных интервалах после распада возбужденного состояния [13, 14]. Это, в частности, обусловлено тем, что при временной селекции уменьшается доля фонового излучения, регистрируемая в области резонансного пика, и, кроме того, некоторая часть этого излучения разнесена по времени. Спектры задержанных совпадений очень чувствительны к эффективной толщине поглотителя и, следовательно, могут быть эффективно использованы для получения информации о вероятности безотдачных переходов мессбауэровских атомов в кристаллах.

В настоящей работе приводятся экспериментальные результаты по применению метода задержанных совпадений для определения фактора Лэмба–Мессбауэра f . В качестве модельного объекта была выбрана желтая кровяная соль (ЖКС), $\text{K}_4\text{Fe}(\text{CN})_6 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$, для которой вероятность безотдачного поглощения f была определена ранее на основе стандартных мессбауэровских измерений по анализу формы линии поглощения [15] и отношения площадей линий в эксперименте с двумя поглотителями [16].

1. Теоретические основы метода

Временная зависимость прошедшего через поглотитель резонансного излучения от времени формирования возбужденного состояния мессбауэровского ядра была впервые рассмотрена теоретически и продемонстрирована экспериментально в работе [17]. Задача была решена с использованием метода показателя преломления, причем поглотитель рассматривался как набор резонансных осцилляторов. Излучение от источника, прошедшее через поглотитель, существенно изменяет свой экспоненциальный характер распада за счет частотной зависимости диэлектрической постоянной образца и определяется выражением [17]

$$i(T) = e^{-T} \left| \sum_{n=0}^{\infty} (i\Delta\omega/\Gamma_0)^n (4T/\beta)^{n/2} J_n(\sqrt{\beta T}) \right|^2 \quad (1)$$

для $2\Delta\omega\beta^{1/2}T^{1/2}/\beta\Gamma_0 < 1$ и выражением

$$i(T) = e^{-T} \left| e^{i[(\Delta\omega T/\Gamma_0) + (\Gamma_0\beta/4\Delta\omega)]} + \sum_{n=1}^{\infty} (i\beta\Gamma_0/4\Delta\omega)^n (\beta T/4)^{-n/2} J_n(\sqrt{\beta T}) \right|^2, \quad (2)$$

когда $2\Delta\omega\beta^{1/2}T^{1/2}/\beta\Gamma_0 > 1$.

Здесь $T = t/\tau$ – время в единицах времени жизни возбужденного состояния τ ; $\Gamma_0 = \hbar/\tau$ – естественная ширина линии резонансного перехода; $\Delta\omega$ – расстройка от резонанса; J_n – функция Бесселя n -го порядка. Такие выражения были получены Харрисом [18] при квантомеханическом рассмотрении. Следует заметить, что приведенные выражения справедливы, когда ширины линий в источнике и поглотителе одинаковы: $\Gamma_S = \Gamma_A$. Однако на практике чаще встречаются случаи, когда они отличаются друг от друга. Это связано как с неоднородностью локального окружения резонансных атомов, так и с релаксационными процессами, приводящими к уширению резонансных линий. Поэтому для практического применения полезны выражения, приведенные в работе [19]. Различие в ширинах линий источника и поглотителя учитывается в них с помощью коэффициента $Q = \Gamma_S/\Gamma_A$. Полагая, что $\Gamma_S = \Gamma_0$, выражение (1) приобретает следующий вид:

$$i(T) = e^{-T/Q} \left| \sum_{n=0}^{\infty} W^n (4T/\beta Q)^{n/2} J_n(\sqrt{\beta T/Q}) \right|^2, \quad (3)$$

где $W = i\Delta\omega Q/\Gamma_0 - (Q - 1)/2$. А выражение (2) – вид

$$i(T) = e^{-T/Q} \left| -\exp(WT - \beta/4W) + \sum_{n=1}^{\infty} (-1/W)^n (\beta Q/4T)^{n/2} J_n(\sqrt{\beta T/Q}) \right|^2. \quad (4)$$

Временная зависимость прошедшего через поглотитель излучения может быть записана в следующем виде (здесь учитывается, что источник испускает кванты с отдачей с вероятностью $(1 - a_S)$):

$$I = (1 - f_s)e^{-T} + f_s i(T), \quad (5)$$

где f_s – фактор Лэмба–Мессбауэра для ядер источника. Для большинства коммерческих источников этот параметр предоставляется производителем, или он известен из литературы [20], или может быть достаточно легко определен экспериментально методом черного поглотителя [2] путем измерения скорости счета

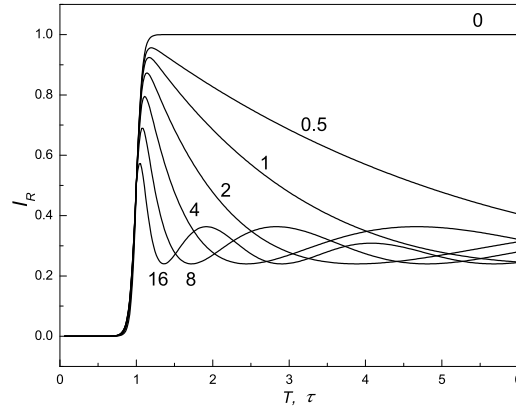


Рис. 1. Редуцированные временные зависимости прошедшего излучения $I_R = e^T \cdot I(T)$, для поглотителей с разной эффективной толщиной $\beta = 0, 0.5, 1, 2, 4, 8, 16$; $\Delta\omega = 0$

резонансных квантов с поглотителем и без него в области резонанса и вдали от резонанса.

На рис. 1 приведены редуцированные временные зависимости прошедшего излучения $I_R = e^T \cdot I(T)$ для поглотителей с разной эффективной толщиной, когда излучение источника находится в резонансе с линией поглощения ($\Delta\omega = 0$). Представленные кривые рассчитаны с помощью выражения (5) с учетом временного разрешения экспериментальной аппаратуры для источника с фактором Лэмба–Мессбауэра f_S равным 0.76, что типично для коммерческих мессбауэровских источников, например ^{57}Co в матрице родия.

Временная зависимость излучения, прошедшего через поглотитель, заметно отличается от экспоненциальной зависимости, присущей для излучения источника (см. рис. 1 для $\beta = 0$, экспериментальная зависимость приведена на рис. 6). В первоначальный момент времени после распада возбужденного состояния передний фронт падающего излучения проходит через поглотитель без заметных искажений. По мере увеличения числа поглощающих центров (то есть увеличения эффективной толщины поглотителя) ширина этой части излучения уменьшается и появляется осциллирующая компонента излучения, положения минимумов и максимумов которого зависят от толщины поглотителя и расстройки от резонанса $\Delta\omega$. Такое поведение прошедшего излучения обусловлено интерференцией падающего резонансного излучения с рассеянным вперед коллективным когерентным излучением (экситонное излучение) [21]. Коллективное возбуждение ансамбля ядер гамма-фотоном рассматривалось в работе [22] и было названо делокализованным ядерным возбуждением, или ядерным экситоном. Было показано, что в этом случае ансамбль ядер ведет себя как макроскопический резонатор со свойствами, отличающимися от свойств индивидуальных ядер [23].

Наиболее характерная особенность приведенных зависимостей – это их чрезвычайная чувствительность к эффективной толщине поглотителя β . Для экспериментального определения эффективной толщины поглотителя по временным спектрам можно использовать два метода. Первый метод основан на использовании зависимости наклона ниспадающей части кривой от толщины образца и является наиболее чувствительным и точным для относительно тонких образцов $\beta < 3$. При точной настройке на резонанс, $\Delta\omega = 0$, временной спектр, обусловленный резонансной частью, определяется выражением $i(T) = e^{-T} J_0^2(\sqrt{\beta T})$ и тангенс угла наклона этой редуцированной кривой, то есть $i_R = e^T \cdot i(T)$, для спектров

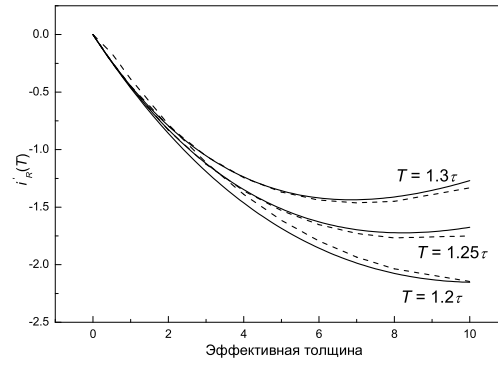


Рис. 2. Зависимость тангенса угла наклона $i'_R(T)$ от эффективной толщины поглотителя в моменты времени $T = 0.2\tau, 0.25\tau, 0.3\tau$ после распада возбужденного состояния. Сплошные линии соответствуют $\sigma_t \rightarrow 0$, штриховые линии – случаю $\sigma_t = 0.07\tau$

с идеальным временным разрешением, $\sigma_t \rightarrow 0$, выражается аналитической формулой:

$$i'_R(T) = \left(J_0^2(\sqrt{\beta T}) \right)' = -\frac{\beta J_0(\sqrt{\beta T}) J_1(\sqrt{\beta T})}{\sqrt{\beta T}}. \quad (6)$$

На рис. 2 сплошной линией приведена зависимость тангенса угла наклона $i'_R(T)$ от эффективной толщины поглотителя β в различные моменты времени ($T = 0.2\tau, 0.25\tau, 0.3\tau$) после распада возбужденного состояния. Для тонких поглотителей зависимость тангенса угла наклона близка к линейной и слабо зависит от выбора участка кривой и временного разрешения регистрирующей аппаратуры. На рис. 2 штриховой линией представлены зависимости тангенса угла наклона временных спектров для аппаратуры с временным разрешением $\sigma_t = 10$ нс (0.07τ для ^{57}Co), характерным для сцинтилляционных детекторов, и в частности экспериментальной аппаратуры, использованной в настоящей работе. Как видно из рис. 2, наиболее оптимальной временной точкой контроля является в этом случае момент времени порядка 0.25τ . Сдвиг в сторону малых времен, например выбор $T = 0.2\tau$, в некоторой степени повышает чувствительность метода и позволяет применить эту методику для более толстых образцов. Однако следует заметить, что при этом будет возрастать влияние временного разрешения регистрирующей аппаратуры. Сдвиг в сторону больших времен, например $T = 0.3\tau$, уменьшает зависимость от временного разрешения аппаратуры, но чувствительность метода сильно понижается уже для образцов с толщиной $\beta > 5$.

Для более толстых поглотителей целесообразно применять методику, основанную на использовании зависимости экстремумов временного спектра от толщины образца. При точном резонансе, $\Delta\omega = 0$, экстремумы временного спектра определяются корнями уравнения:

$$-e^{-T} J_0^2(\sqrt{\beta T}) - \frac{\beta J_0(\sqrt{\beta T}) J_1(\sqrt{\beta T})}{\sqrt{\beta T}} = 0.$$

На рис. 3 приведены зависимости положения некоторых экстремумов (первый минимум, первый максимум и второй минимум) временного спектра от толщины поглотителя. Как видно, положение первого максимума достаточно чувствительно к толщине поглотителя в сравнительно большом интервале.

Следует заметить, что настройка на точный резонанс не является обязательным условием этой методики. Временные спектры чувствительны к толщине поглотителя даже при расстройках $\Delta\omega$ порядка нескольких ширин линий. Это позволяет избегать использования режима движения источника с постоянной скоростью

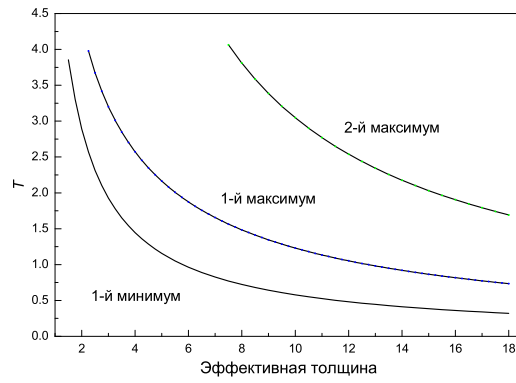


Рис. 3. Зависимость положения экстремумов временного спектра от толщины поглотителя

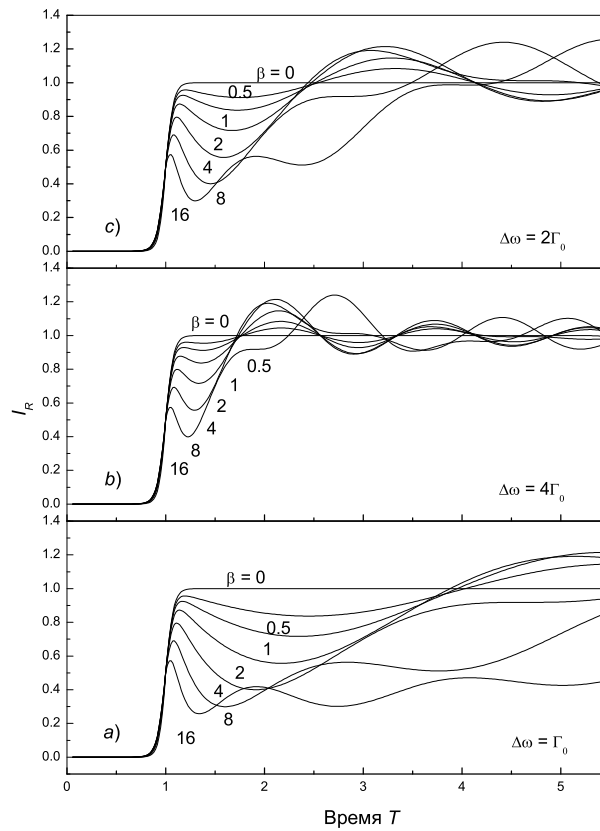
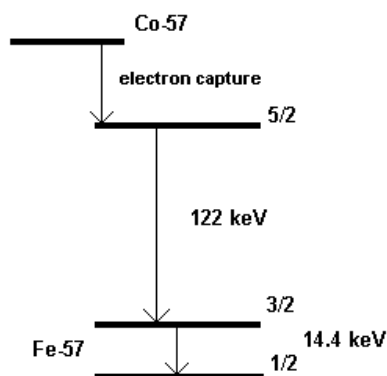


Рис. 4. Редуцированные временные зависимости прошедшего излучения $I_R = e^T \cdot I(T)$ для поглотителей с разной эффективной толщиной ($\beta = 0, 0.5, 1, 2, 4, 8, 16$) и разной расстройкой от резонанса: а) $\Delta\omega = \Gamma_0$; б) $\Delta\omega = 2\Gamma_0$; в) $\Delta\omega = 4\Gamma_0$

и повысить скорость накопления спектра, поскольку при этом отсутствует трата времени на обратный ход источника.

На рис. 4 приведены редуцированные модельные спектры для поглотителей с разной толщиной при расстройке от резонанса на Γ_0 , $2\Gamma_0$ и $4\Gamma_0$. Как видно, спек-

Рис. 5. Схема распада ^{57}Co

тры богаты структурными особенностями, что позволяет однозначно определить эффективную толщину поглотителя при известной расстройке линии от резонанса. При небольшой расстройке $\Delta\omega$ сумма функций Бесселя в выражении (1) сходится достаточно быстро и подгонка экспериментального спектра методом наименьших квадратов происходит за приемлемое время при использовании стандартных математических пакетов, имеющих в “Matematica”, “MatLab” и др. Для толстых образцов и больших расстроек хорошо сходится выражение (2).

2. Эксперимент и результаты

Эксперименты по определению фактора Лэмба–Мессбауэра методом задержанных совпадений были проведены с помощью источника ^{57}Co в матрице родия. Схема распада ядра ^{57}Co приведена на рис. 5. В результате распада излучаются гамма-кванты с энергиями 136.4 кэВ ($\sim 9\%$), 122 кэВ ($\sim 91\%$), и за счет распада возбужденного состояния со спином $I = 3/2$ возникает излучение с энергией 14.4 кэВ. Момент регистрации фотона с энергией 122 кэВ, свидетельствующий о формировании возбужденного состояния ($I = 5/2$), может быть использован как метка времени для метода задержанных совпадений.

Блок-схема экспериментальной аппаратура приведена на рис. 6 и представляла собой комплекс стандартных узлов, обычно используемых в мессбауэровской спектроскопии с временной селекцией (Time-Differential Mössbauer Spectroscopy). Источник ^{57}Co Rh был закреплен на штоке мессбауэровского движителя, который использовался для настройки на резонанс линию излучения источника с линией поглощения образца. Фотоны с энергией 122 кэВ регистрировались с помощью ФЭУ RCA 8575 со сцинтилляционным кристаллом NaI(Tl) диаметром 25 мм и толщиной 15 мм. Для ослабления низкоэнергетических фотонов на этом канале использовалась медная фольга толщиной 0.1 мм. Выходной сигнал с быстрого динода фотоумножителя усиливался с помощью быстродействующего усилителя (Canberra, Model 2111) и подавался на вход дискриминатора постоянных отношений (Canberra, Model 2121), который вырабатывал старт-сигнал для преобразователя время–амплитуда, ПВА, (Canberra, TAC/SCA 2145).

Второй сцинтилляционный детектор с кристаллом NaI(Tl) диаметром 25 мм и толщиной 0.1 мм использовался для регистрации гамма-фотонов с энергией 14.4 кэВ. Его сигнал усиливался с помощью усилителя (Canberra, Model 2121) и формировался стоп-сигнал для преобразователя время–амплитуда с помощью дискриминатора постоянных отношений (Canberra, Model 2121). Медленный сигнал с этого фотоумножителя усиливался спектрометрическим усилителем и с по-

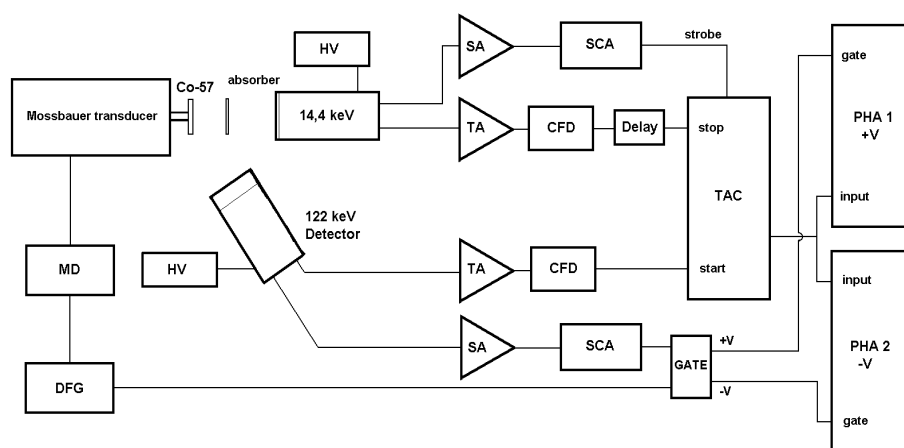


Рис. 6. Упрощенная блок-схема экспериментальной аппаратуры. Использованы следующие обозначения: ТАС – преобразователь время – амплитуда; PHA – амплитудный анализатор; ТА – быстродействующий усилитель; СА – спектроскопический усилитель; СКА – одноканальный анализатор; CFD – дискриминатор постоянных отношений; DFG – функциональный генератор; MD – система движения мессбауэровского спектрометра; HV – источник высокого напряжения

мощью одноканального анализатора (AMP&TSCA, Model 290A, Ortec) выбирались импульсы, соответствующие фотонам с энергией 14.4 кэВ. Эти сигналы были использованы как строб-импульсы, дающие разрешение преобразователю время – амплитуда на формирование сигнала, амплитуда которого пропорциональна временному интервалу между старт- и стоп-импульсами (122 кэВ и 14.4 кэВ соответственно). Для устранения нежелательных паразитных эффектов [24] от мягкого рентгеновского излучения и комптоновского излучения высокоэнергичных фотонов детекторы были экранированы свинцовым кожухом.

Выходные импульсы преобразователя ПВА, пропорциональные по амплитуде временному интервалу между старт- и стоп-сигналами, подавались на входы двух многоканальных анализаторов (СМКА-550, Wissel), работающих в режиме амплитудного анализа. Амплитудные (временные) спектры записывались в память того или иного многоканального анализатора в зависимости от сигнала разрешения на запись на входе “Gate”, поступающего от генератора системы движения и амплитудного дискриминатора, выбирающего импульсы от фотонов с энергией 122 кэВ. Система движения работала в режиме постоянных скоростей. Таким образом, в памяти одного из анализаторов собирался временной спектр образца, когда скорость движения источника была в резонансе с линией поглощения, а в другом – когда энергия излучения источника была далеко от резонанса.

Временной спектрометр (преобразователь ПВА и многоканальный анализатор, работающий в режиме амплитудного анализа) был калиброван с помощью маркера времени (Tektronix RM 181) и осциллографа (Tektronix TDS 2022).

Типичный экспериментальный спектр распада возбужденного уровня ^{57}Fe с энергией 14.4 кэВ приведен на рис. 7. Математическая обработка спектра экспоненциальной функцией, свернутой с распределением Гаусса, показала, что временное разрешение спектрометра – порядка 9.1(5) нс. Кривая распада соответствовала экспоненциальному распаду $e^{-t/\tau}$ с временем жизни возбужденного состояния $\tau = \hbar\Gamma_0$, равным 140.(9) нс, что хорошо согласуется с данными предыдущих исследований (см., например, [17]).

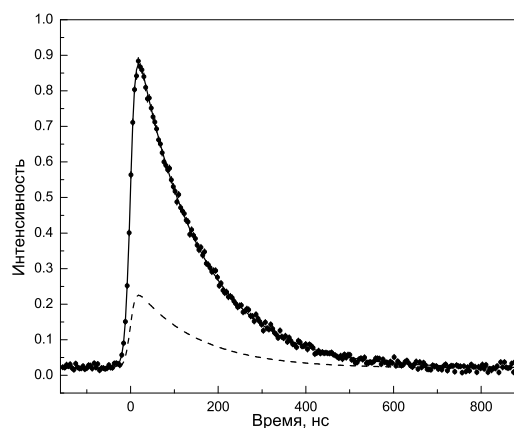


Рис. 7. Кривая распада возбужденного состояния $I = 3/2$ (14.4 кэВ) ядра ^{57}Fe . Сплошной линией представлен результат подгонки экспоненциальной функцией с константой распада, равной 140.(9) нс

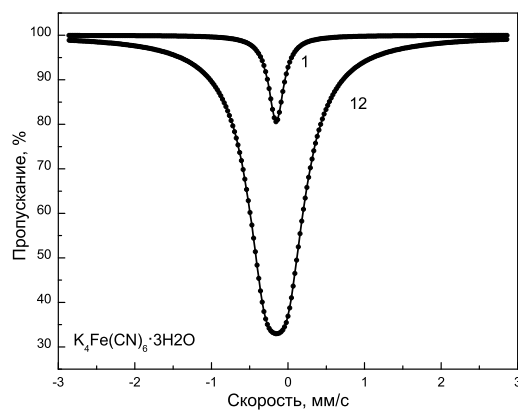


Рис. 8. Мессбауэровские спектры $\text{K}_4\text{Fe}(\text{CN})_6 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ с естественным содержанием ^{57}Fe (обр. № 1) и обогащенные изотопом (обр. № 12)

Для апробации вышеописанной методики в качестве поглотителя была выбрана желтая кровяная соль $\text{K}_4\text{Fe}(\text{CN})_6 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$. Кристаллы с естественным содержанием ^{57}Fe (Alfa Aesar) были использованы для приготовления образцов с малой толщиной. Для более толстых образцов были использованы обогащенные ^{57}Fe кристаллы, синтезированные в Институте физики металлов УрО РАН (г. Екатеринбург). ЖКС достаточно хорошо изучена мессбауэровской спектроскопией [25]. Её спектр состоит из слегка уширенной лоренцевской линии с изомерным сдвигом $\delta_{\text{Fe}} = -0.04(6)$ мм/с и шириной $\Gamma = 0.23(8)$ мм/с, что хорошо согласуется с литературными данными [26, 27]. На рис. 8 показаны типичные спектры образцов с естественным содержанием железа (обр. № 1) и обогащенный изотопом ^{57}Fe (обр. № 12). Кристаллы были тщательно протерты в агатовой ступке. Образцы с естественным содержанием железа были также просеяны через сито № 400 (размер ячеек ~ 38 микрон) для получения однородных по размеру частиц. Взвешивание проводилось с помощью аналитических весов с точностью 0.1 мг.

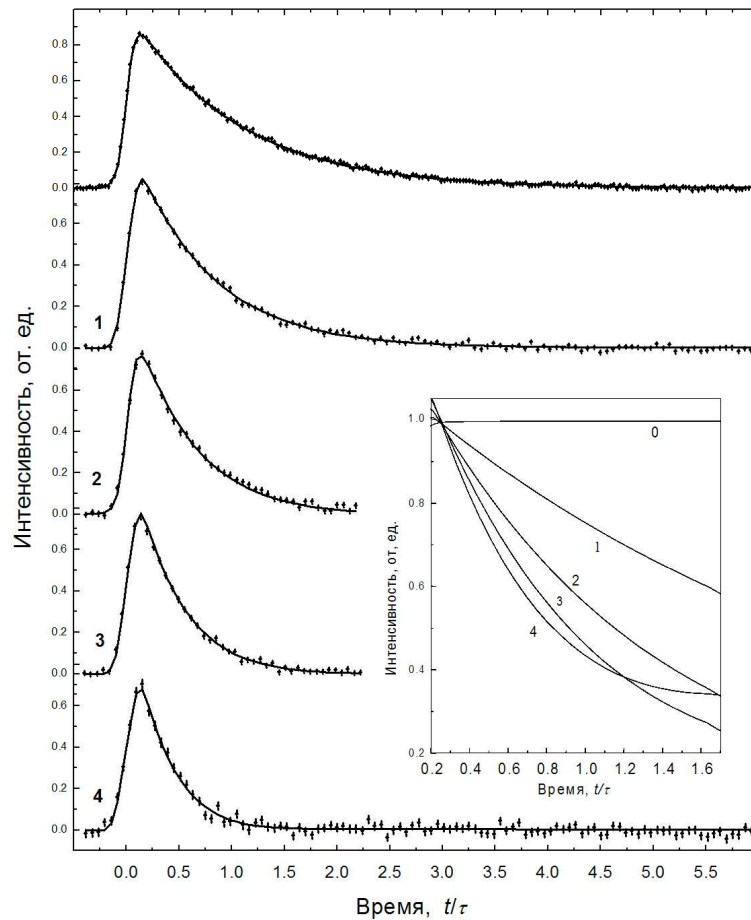


Рис. 9. Спектры задержанных совпадений для тонких образцов: $\beta = 3.07$ (4), 2.14 (3), 1.4 (2), 0.7 (1), 0 (0). Вставка – зависимость угла наклона временного спектра от толщины поглотителя

Измерения временных спектров методом задержанных совпадений были проведены с помощью источника $^{57}\text{Co Rh}$ активностью порядка 75 kBq. Фактор безотдачного излучения источника f_S был определен методом «черного» поглотителя [2] с помощью коммерческого поглотителя MRA1.7 (Ritverc). Измерения показали, что фактор безотдачного излучения источника равен 0.76(1), что хорошо согласуется с данными производителя (Ritverc) и литературы [16]. Эта величина была использована при математической обработке экспериментальных результатов. Следует заметить, что, кроме резонансного $f_S \cdot i(T)$ и нерезонансного $(1 - f_S) \cdot e^{-T}$ вкладов излучения источника, определенная часть экспериментального спектра обусловлена случайными совпадениями. Эта часть представляет собой однородный по всей временной шкале фон, ее можно существенно уменьшить выбором активности источника и телесного угла регистрации старт- и стоп-сигналов. Фон случайных совпадений легко определяется усреднением числа отчетов на начальном участке временного спектра ($T < 0$) и на участке, когда T больше $5 \div 6\tau$ и эффекты интерференции падающего и рассеянного вперед излучения незначительны.

На рис. 9 и 10 приведены временные спектры после вычитания фона случайных совпадений и нерезонансного вклада, обусловленного излучением источника

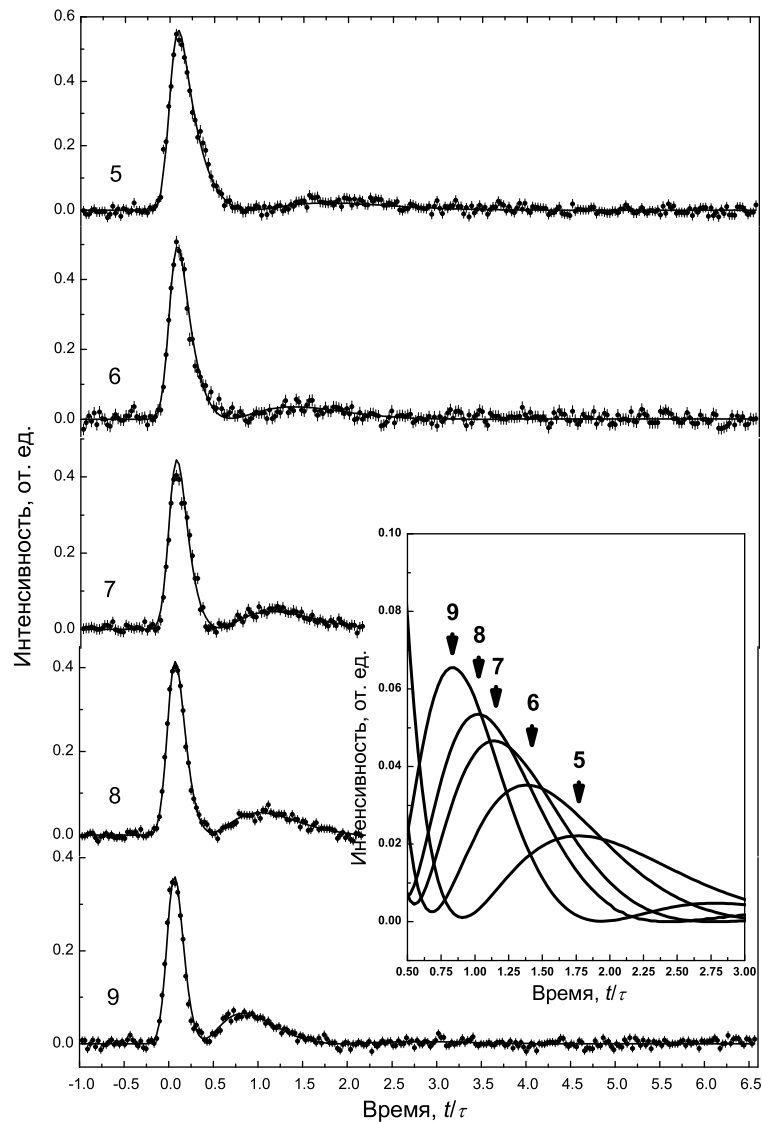


Рис. 10. Экспериментальные спектры задержанных совпадений для образцов ЖКС с эффективной толщиной $5 < \beta < 16$. Вставка – зависимость положения первого максимума от толщины поглотителя

гамма-квантов, испущенных с отдачей. Как можно видеть на рис. 9, при настройке на резонанс ($\Delta\omega = 0$) для сравнительно тонких образцов ($\beta < 5$) тангенс угла наклона ниспадающей части временного спектра зависит от толщины образца. Во вставке показаны кривые, аппроксимирующие экспериментальные спектры, совмещенные в точке $T = 0.25\tau$. Эффективная толщина поглотителя β для этих спектров легко определяется с помощью рис. 2 или формулы (6).

На рис. 10 приведены спектры задержанных совпадений для более толстых образцов ($\beta > 5$). По мере увеличения толщины поглотителя осциллирующая часть излучения, обусловленная интерференцией падающего резонансного излучения с рассеянным вперед коллективным излучением, становится более выраженной, и положение его экстремумов смещается в сторону более коротких времен. На вставке

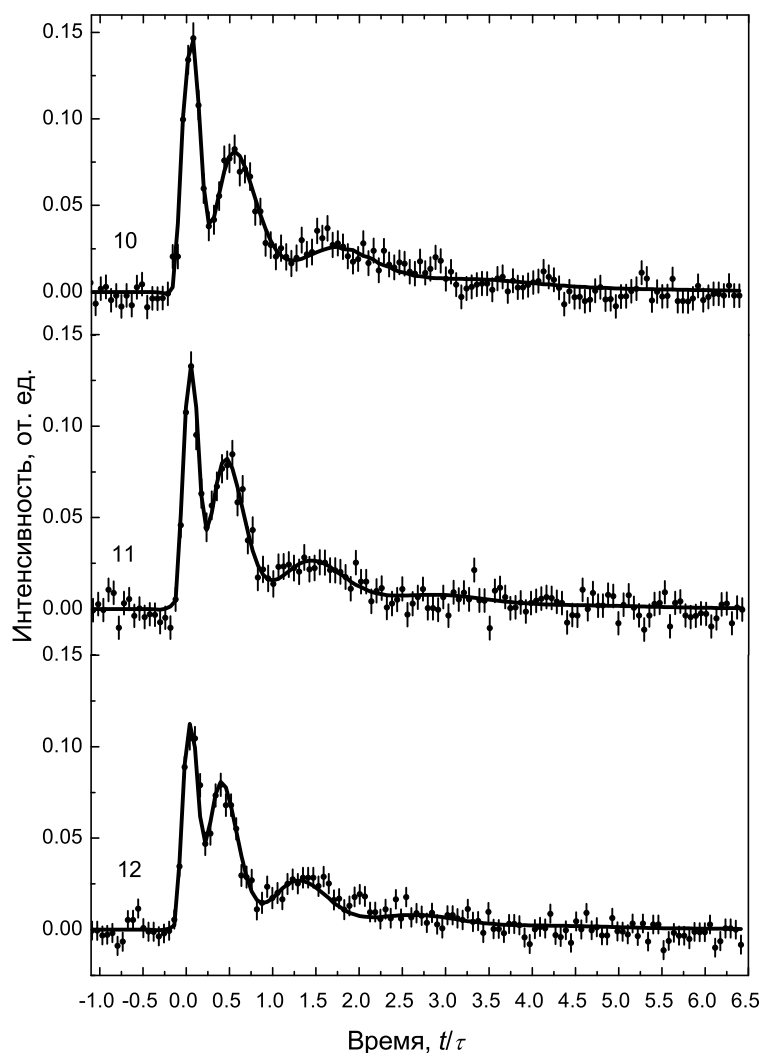


Рис. 11. Спектры задержанных совпадений для образцов с эффективной толщиной $\beta > 20$

рис. 10 показаны более крупным планом кривые, аппроксимирующие экспериментальные спектры для образцов с эффективной толщиной $5 < \beta < 16$. Стрелками обозначены положения первого максимума. Для этой серии образцов максимумы спектров наблюдались при $T = 1.76(9)$ (обр. № 5), $1.38(2)$ (обр. № 6), $1.14(4)$ (обр. № 7), $1.02(5)$ (обр. № 8) и $0.84(6)$ (обр. № 9). Используя график на рис. 9, можно легко определить эффективную толщину этих образцов.

Дальнейшее увеличение толщины поглотителей приводит к сильному ослаблению сигнала и увеличению времени накопления при съемке спектров в точном резонансе. Поэтому спектры образцов с эффективной толщиной $\beta > 20$ были сняты при неподвижном источнике, что дало возможность сократить время накопления почти в 2 раза. Изомерный сдвиг ЖКС относительно источника ^{57}Co в матрице родия составляет 0.146 мм/с, и, следовательно, расстройка от резонанса $\Delta\omega$ для этих измерений была порядка $1.5\Gamma_0$.

На рис. 11 показаны экспериментальные спектры задержанных совпадений этих образцов. Сплошной линией приведены кривые, полученные подгонкой экспери-

Табл. 1

Взвешенная масса исследованных образцов на единицу площади, рассчитанная масса ядер ^{57}Fe на единицу площади и значения эффективной толщины образцов: * – ЖКС с естественным содержанием ^{57}Fe (2.141%); ** – 95%-ное обогащение изотопом ^{57}Fe

№	Масса образца, мг/см ²	Масса ядер ^{57}Fe , мг/см ²	Эффективная толщина, β
1	24.8*	0.07	0.7(0)
2	56.7*	0.16	1.4(7)
3	88.5*	0.25	2.1(4)
4	131.1*	0.37	3.0(5)
5	5.4* + 5.4**	0.69	6.4(8)
6	7.3* + 7.3**	0.93	8.7(5)
7	9.7**	1.24	10.9(8)
8	10.7**	1.37	12.5(3)
9	13.9**	1.77	15.8(0)
10	17.4**	2.22	20.2(4)
11	21.3**	2.72	25.3(8)
12	24.7**	3.16	28.7(2)

ментального спектра формулой (1). Это выражение хорошо описывает экспериментальные спектры на наиболее информативном участке временного спектра, однако при данной расстройке условие $2\Delta\omega\beta^{1/2}T^{1/2}/\beta\Gamma_0 < 1$ выполняется не на всем участке временного спектра, что требует учета большего числа слагаемых в формуле (1) для описания спектра в интервале больших времен ($T > 2\tau$). Вклад составляющей с функцией Бесселя n -го порядка, пропорциональный $e^{-T}(4T/\beta)^n(\Delta\omega/\Gamma_0)^{2n}J_n^2(\sqrt{\beta T})$, уменьшается с возрастанием n . Поэтому в условиях данного эксперимента достаточно высокая точность вычислений для всей временной шкалы достигается уже при n порядка 50. Сплошные кривые на рис. 11 представляют наилучшие результаты подгонки экспериментальных спектров методом наименьших квадратов.

Фактор Лэмба–Мессбауэра полностью определяется эффективной толщиной β и поверхностной плотностью (n) ядер ^{57}Fe в образце $f = \beta/n\sigma_0$ ($\sigma_0 = 2.57 \cdot 10^{-18}$ см²), и одним из важных факторов получения достоверного параметра является однородность образца по толщине. Поэтому, кроме тщательной подготовки образцов с выбором однородных по размеру частиц, применения вибрационного размешивания (обр. № 5 и № 6) и равномерного уплотнения в пуансонной кювете, для измерения отбирались только те образцы, для которых изменение скорости счета фотонов (14.4 кэВ) через мессбауэровскую апертуру диаметром 0.6 мм было не более 2% на различных участках образца. Для расчета поверхностной плотности ядер ^{57}Fe использовались величины обогащения 2.14% для образцов с естественным содержанием железа и 95% для обогащенных образцов.

В табл. 1 приведены взвешенная масса исследованных образцов на единицу площади, рассчитанная масса ядер ^{57}Fe на единицу площади и значения эффективной толщины образцов, полученные из спектров задержанных совпадений. На рис. 12 показана зависимость эффективной толщины β от поверхностной плотности ядер ^{57}Fe . Как видно, наблюдается линейная зависимость между этими величинами, и наклон экспериментальной кривой соответствует фактору Лэмба–Мессбауэра $f = 0.339 \pm 0.004$. Полученное значение очень близко к данным, опубликованным ранее ($f = 0.311$ – по измерениям формы мессбауэровской линии [15]; $f = 0.281$ – с использованием метода двух поглотителей [16]; $f = 0.29$ – с помощью

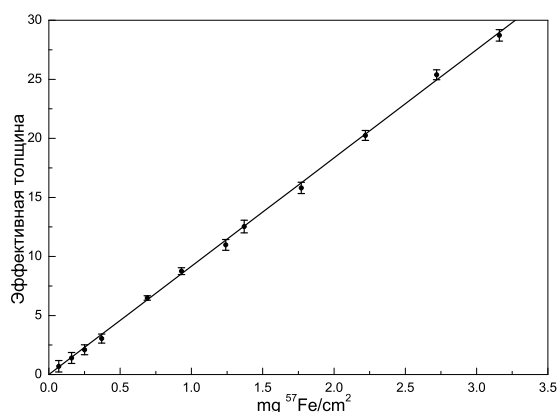


Рис. 12. Зависимость эффективной толщины β образцов ЖКС от поверхностной плотности ядер ^{57}Fe

зависимости ширины линии от толщины образца [28]). Тем не менее следует отметить, что полученное значение отличается от вышеперечисленных значений на величину, существенно превышающую ошибку эксперимента. Одной из возможных причин может быть более точное определение вероятности безотдачного поглощения методом задержанных совпадений [29] и лучшая однородность по толщине исследованных нами образцов.

3. Выводы

Проведенные экспериментальные исследования показывают, что спектры задержанных совпадений очень чувствительны к эффективной толщине поглотителя и могут быть эффективно использованы для определения вероятности безотдачного поглощения. Предлагаемый в работе метод имеет ряд преимуществ по сравнению с известными в мессбауэровской спектроскопии методами определения эффективной толщины поглотителя по зависимости ширины, интенсивности и площади мессбауэровской линии от толщины поглотителя. Это, в частности, обусловлено тем, что при временной селекции уменьшается доля фонового излучения, обычно затрудняющего получение достоверных величин фактора Лэмба–Мессбауэра из мессбауэровских спектров.

Интерференция падающего и рассеянного вперед резонансного излучения приводит к отклонению временного спектра от экспоненциальной зависимости и формированию осциллирующей составляющей, экстремумы которой зависят от эффективной толщины поглотителя и расстройки энергии излучения источника от условий резонанса с линией поглощения. Данная методика была использована для определения фактора Лэмба–Мессбауэра атомов железа в ЖКС. Измерения показали, что при комнатной температуре вероятность безотдачных переходов ядер ^{57}Fe равна 0.339 ± 0.004 .

Следует отметить, что хотя применение методики задержанных совпадений для определения фактора Лэмба–Мессбауэра было проанализировано в настоящей работе только для случая очень «удобного» для мессбауэровской спектроскопии изотопа (^{57}Fe) и соединения (ЖКС), можно надеяться на то, что его применение будет оправданным и в случаях, когда обычные мессбауэровские методы испытывают существенные затруднения (например, долгоживущие изотопы).

Работа была поддержана РФФИ (проект № 08-02-00903-а) и US NSF.

Summary

F.G. Vagizov, E.K. Sadykov, V.V. Arinin, O.A. Kocharovskaya. Determination of the Recoilless Absorption Fraction of Gamma Quanta by Nuclei in Solids Using a Delayed Coincidence Technique.

The method for determination of the Lamb–Mössbauer factor by the delayed coincidence technique is proposed. It was used to determine this factor for ^{57}Fe nuclei in $\text{K}_4\text{Fe}(\text{CN})_6 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$. For this compound the recoilless absorption fraction of 0.339 ± 0.004 at room temperature has been obtained.

Key words: Lamb–Mössbauer factor, Mössbauer spectroscopy, delayed coincidence technique.

Литература

1. *Chen Yi-L., Yang De-P.* Mössbauer Effect in Lattice Dynamics. – Weinheim: WILEY-VCH Verlag&GmbH Co. KGaA, 2007. – 423 p.
2. *Housley R.M., Erickson N.E., Dash J.G.* Measurement of recoil-free fractions in studies of the Mössbauer effect // Nucl. Instrum. Meth. – 1964. – V. 27. – P. 29–37.
3. *Margulies S., Ehrman J.R.* Transmission and Line broadening of resonance radiation incident on a resonance absorber // Nucl. Instrum. Meth. – 1961. – V. 12. – P. 131–137.
4. *O'Connor D.A.* The effect of line broadening of Mössbauer resonant sources and absorbers on the resonance absorption // Nucl. Instrum. Meth. – 1963. – V. 21. – P. 318–322.
5. *O'Connor D.A., Longworth G.* Measurement of the unequal line widths and recoilless fractions of the source and absorber in nuclear resonance // Nucl. Instrum. Meth. – 1964. – V. 30. – P. 290–292.
6. *Bykov G.A., Hien Ph.Z.* Calculation of parameters of experimental spectra of resonance absorption of gamma quanta in crystals // JETP Lett. – 1963. – V. 16. – P. 646–651.
7. *Williams J.M., Brooks J.S.* The thickness dependence of Mössbauer absorption line areas in unpolarized and polarized absorbers // Nucl. Instrum. Meth. – 1975. – V. 128. – P. 363–372.
8. *Stieler W., Hillberg M., Litterst F.J., Bottger Ch., Hesse J.* Numerical evaluation of Mössbauer spectra from thick absorbers // Nucl. Instrum. Meth. B. – 1995. – V. 95. – P. 235–242.
9. *Shirley D.A., Kaplan M., Axel P.* Recoil-free resonant absorption in Au^{197} // Phys. Rev. – 1961. – V. 123. – P. 816–830.
10. *Lang G.* Interpretation of experimental Mössbauer spectrum areas // Nucl. Instrum. Meth. – 1963. – V. 24. – P. 425–428.
11. *O'Connor D.A., Skyrme G.* The determination of the recoilless fraction of Mössbauer absorbers // Nucl. Instrum. Meth. – 1973. – V. 106. – P. 77–81.
12. *Housley R.M.* Discussion of factors affecting the absolute accuracy of Mössbauer f measurements // Nucl. Instrum. Meth. – 1965. – V. 35. – P. 77–82.
13. *Triftshauser W., Craig P.P.* Time independence of charge states produced following electron capture in Co^{57} // Phys. Rev. Lett. – 1966. – V. 16. – P. 1161–1164.
14. *Hamil D.W., Hoy G.R.* Coincidence-Mössbauer spectroscopy // Phys. Rev. Lett. – 1968. – V. 21. – P. 724–726.
15. *Kobayashi T., Fukumura K.* Recoilless fraction of potassium ferrocyanide // Nucl. Instrum. Meth. – 1981. – V. 180. – P. 549–551.
16. *Ball J., Lyle S.* A method for the determination of the Lamb-Mössbauer factor for a crystal lattice // Nucl. Instrum. Meth. – 1979. – V. 163. – P. 177–181.

17. *Lynch F.J., Holland R.E., Hamermesh M.* Time dependence of resonantly filtered gamma rays from Fe⁵⁷ // *Phys. Rev.* – 1960. – V. 120. – P. 513–520.
18. *Harris S.M.* Quantum mechanical calculation of Mossbauer transmission // *Phys. Rev.* – 1961. – V. 124. – P. 1178–1185.
19. *Perlow G.J.* Temporal optics of recoil-free gamma radiation // *Hyperfine Interact.* – 1992. – V. 72. – P. 51–62.
20. *Qaim S.M.* Recoil-free fractions of the 14.4 keV Mossbauer gamma line of ⁵⁷Fe in various host lattices // *J. Phys. F: Metal Phys.* – 1971. – V. 1. – P. 320–327.
21. *Shakhmuratov R., Vagizov F., Kocharovskaya O., Odeurs J.* Slow γ photon with a doublet structure: Time delay via a transition from destructive to constructive interference of collectively scattered radiation with the incoming photon // *Phys. Rev. A.* – 2009. – V. 80. – P. 063805-1–063805-15.
22. *Haas M., Hizhnyakov V., Realo E., Joci J.* Nuclear polaritons in the Mossbauer absorber // *Phys. Stat. Sol. (b).* – 1988. – V. 149. – P. 283–290.
23. *Smirnov G.V.* General properties of nuclear resonant scattering // *Hyperfine Interact.* – 1999. – V. 123/124. – P. 31–77.
24. *McDermott W.C., Johnson D.E., Hoy G.R.* Gamma-ray optics using Co⁵⁷ doped iron single crystals // *Hyperfine Interact.* – 1994. – V. 92. – P. 1077–1082.
25. *Greenwood N.N., Gibb T.C.* Mossbauer Spectroscopy. – London: Chapman and Hall Ltd, 1971. – 671 p.
26. *Kerler W., Neuwirth W.* Messungen des Mossbauer effects von Fe⁵⁷ zahlreichen eisenverbindungen bei verschiedenen temperaturen // *Z. Physik.* – 1962. – Bd. 167. – S. 176–193.
27. *Fluck E., Kuhn P.* Mossbauer spektren von hexazido-ferra(III) und prusiat-komplexes // *Z. Anorg. Chem.* – 1967. – Bd. 350. – S. 263–270.
28. *Angelov V., Bonchev T., Rusanov V., Mandjukov I.* On the probability of recoilless absorption f' and reemission f'' in some Fe-containing compounds // *Phys. Stat. Sol. (b).* – 1988. – V. 146. – P. 269–277.
29. *Tittonen I., Lippmaa M., Helisto P., Katila T.* Stepwise phase modulation of recoilless gamma radiation in a coincidence experiment: Gamma echo // *Phys. Rev. B.* – 1993. – V. 47. – P. 7840–7846.

Поступила в редакцию
07.12.09

Вагизов Фарит Габдулхакович – кандидат физико-математических наук, доцент кафедры физики твердого тела Казанского государственного университета.

E-mail: vagizov@jewel.tamu.edu

Садыков Эдгар Камилович – доктор физико-математических наук, профессор кафедры физики твердого тела Казанского государственного университета.

E-mail: esad@ksu.ru

Аринин Виталий Валерьевич – инженер кафедры физики твердого тела Казанского государственного университета.

E-mail: varininse@mail.ru

Кочаровская Ольга Анатольевна – доктор физико-математических наук, профессор Техасского университета, штат Техас, США.

E-mail: kochar@jewel.tamu.edu